

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2006 年 9 月 8 日 (08.09.2006)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2006/092923 A1

- (51) 国際特許分類:  
C03C 27/12 (2006.01) C09K 3/00 (2006.01)  
C09J 129/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/301751
- (22) 国際出願日: 2006 年 2 月 2 日 (02.02.2006)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2005-054700 2005 年 2 月 28 日 (28.02.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満 2 丁目 4 番 4 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 丸本 忠 (MARU-MOTO, Tadashi) [JP/JP]; 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉 1 2 5 9 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).
- (74) 代理人: 岩谷 龍 (IWATANI, Ryo); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島 2 丁目 1 番 3 1 号 O R I X 堂島ビル 3 階 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 規則4.17に規定する申立て:  
— 出願し及び特許を与えられる出願人の資格に関する申立て (規則4.17(ii))  
— 発明者である旨の申立て (規則 4.17(iv))
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: COLORED INTERMEDIATE FILM FOR LAMINATED GLASS AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用着色中間膜および合わせガラス

(57) Abstract: A colored intermediate film for a laminated glass which is formed from a resin composition containing a poly(vinyl acetal) resin, a coloring agent and an agent for shielding an infrared ray, characterized in that the resin composition further comprises a phosphoric acid ester compound in an amount of 5 parts by weight or less relative to 100 parts by weight of the poly(vinyl acetal) resin; and a laminated glass using the colored intermediate film. The above colored intermediate film for a laminated glass is excellent in the infrared ray shielding property and is free from the whitening thereof even when the film absorbs moisture, while retaining the basic performance capability as an intermediate film for a laminated glass.

(57) 要約: 本発明は、合わせガラス用中間膜としての基本性能を維持しつつ、赤外線遮蔽性に優れ、吸湿しても中間膜部が白化しない合わせガラス用着色中間膜およびそれを用いた合わせガラスを提供することを目的とする。本発明の合わせガラス用着色中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と着色剤と赤外線遮蔽剤とを含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用着色中間膜であって、樹脂組成物が、さらにポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対して 5 重量部以下の割合でリン酸エステル化合物を含有することを特徴とする。

WO 2006/092923 A1

## 明 細 書

### 合わせガラス用着色中間膜および合わせガラス

#### 技術分野

- [0001] 本発明は、合わせガラス用着色中間膜および該合わせガラス用着色中間膜を用いた合わせガラスに関する。

#### 背景技術

- [0002] 従来より、少なくとも二枚のガラス板の間にポリビニルブチラール樹脂からなる中間膜が挟着されてなる合わせガラスは、透明性、耐候性、接着性および耐貫通性に優れ、さらに、ガラス破片が飛散しにくいといった性能を基本性能として有しているため、例えば、自動車や建築物の窓ガラスに広く使用されている。

また、合わせガラスの審美性を高めるために、ポリビニルアセタール樹脂に着色剤を含有せしめた着色中間膜を用いた合わせガラスも広く使用されている。

- [0003] しかしながら、着色中間膜は、湿度の高い雰囲気中に置くと白化して、着色中間膜本来の色が白く変色するおそれがあった。また、着色中間膜では透明性が高いものが望まれるが、光線透過率が50%を越えるような着色中間膜では、わずかな白化でも変色が目立ちやすいという問題がある。このため、着色中間膜の白化を防止して着色中間膜本来の色を維持できる合わせガラス用着色中間膜およびそれを用いた合わせガラスの開発が望まれていた。

#### 発明の開示

#### 発明が解決しようとする課題

- [0004] 本発明の目的は、合わせガラス用中間膜としての基本性能を維持しつつ、赤外線遮蔽性に優れ、かつ吸湿しても中間膜部が白化しない合わせガラス用着色中間膜およびそれを用いた合わせガラスを提供することにある。本発明の他の目的は、透明性が高いにもかかわらず、白化が防止されて本来の色目を保ち続けることができ、しかも低い赤外線透過率を維持できる着色中間膜およびそれを用いた合わせガラスを提供することになる。

#### 課題を解決するための手段

[0005] 本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意検討した結果、ポリビニルアセタール樹脂と着色剤と赤外線遮蔽剤とを含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用着色中間膜において、樹脂組成物に、さらにポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して5重量部以下の割合でリン酸エステル化合物を含有させることにより、上記の課題を一挙に解決できることを見出し、さらに検討を重ねて本発明を完成させた。

[0006] すなわち、本発明は、

(1) ポリビニルアセタール樹脂と着色剤と赤外線遮蔽剤とを含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用着色中間膜であって、樹脂組成物が、さらにポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して5重量部以下の割合でリン酸エステル化合物を含有することを特徴とする合わせガラス用着色中間膜、

(2) リン酸エステル化合物が、トリアルキルホスフェート、トリアルコキシアルキルホスフェート、トリアルルホスフェートまたはアルキル・アリルホスフェートである前記(1)に記載の合わせガラス用着色中間膜、

(3) リン酸エステル化合物が、トリオクチルホスフェート、トリスプロピルホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリクレシルホスフェートまたはイソデシルフェニルホスフェートである前記(1)に記載の合わせガラス用着色中間膜、

(4) リン酸エステル化合物の含有量がポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.001～5重量%である前記(1)～(3)のいずれかに記載の合わせガラス用着色中間膜、

および

(5) 少なくとも一対のガラス間に、前記(1)～(4)のいずれかに記載の合わせガラス用着色中間膜を介在させてなることを特徴とする合わせガラス、  
に関する。

### 発明の効果

[0007] 本発明の合わせガラス用着色中間膜およびそれを用いた合わせガラスは、合わせガラス用中間膜もしくは合わせガラスとしての基本性能を維持しつつ、赤外線遮蔽性に優れ、かつ白化しないという効果を有する。また、本発明の合わせガラス用着色中間膜およびそれを用いた合わせガラスは、透明性が高くても、赤外線遮蔽性に優れ

、かつ白化を防止して本来の色目を保ち続けることができるという効果を有する。

### 発明を実施するための最良の形態

- [0008] 本発明の合わせガラス用着色中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と着色剤と赤外線遮蔽剤とを含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用着色中間膜であって、樹脂組成物が、さらにポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して5重量部以下の割合でリン酸エステル化合物を含有することを特徴とする。
- [0009] 本発明で用いられるリン酸エステル化合物としては、例えば、トリアルキルホスフェート、トリアルコキシアルキルホスフェート、トリアリルホスフェート、アルキル・アリルホスフェートなどが挙げられ、ここに「アルキル」とは、炭素数1～12のアルキル基をいい、「アリル」とは置換基で置換されていてもよい芳香族炭化水素基(例えば、炭素数1～4の低級アルキル、炭素数1～4の低級アルコキシなどの置換基で置換されていてもよいフェニル基)をいう。上記リン酸エステル化合物のより具体的な例としては、例えば、トリオクチルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリクレシルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェートなどが挙げられる。
- [0010] 上記リン酸エステル化合物の含有量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して5重量部以下であり、通常0.001～5重量部である。
- [0011] 本発明で用いられるポリビニルアセタール樹脂としては、平均アセタール化度40～75モル%のものが好ましい。40モル%未満であると、可塑剤との相溶性が低下して、耐貫通性の確保に必要な量の可塑剤を混合し難くなる場合がある。75モル%を越えると、得られる合わせガラス用着色中間膜の機械的強度が低下するとともに、樹脂を得るために長時間の反応時間を要し、プロセス上好ましくないことがある。より好ましくは、60～75モル%であり、更に好ましくは、64～71モル%である。
- なお、前記ポリビニルアセタール樹脂は、可塑剤とともに可塑化ポリビニルアセタール樹脂として好適に用いられうる。
- [0012] 上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂中においては、ビニルアセテート成分が30モル%以下のものが好ましい。30モル%を越えると、樹脂の製造時にブロッキングを起こし易くなるため、製造しにくくなる。好ましくは、19モル%以下である。
- [0013] 上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂は、ビニルアセタール成分、ビニルアルコー

ル成分及びビニルアセテート成分とから構成されており、これらの各成分量は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や核磁気共鳴法(NMR)に基づいて測定することができる。

[0014] 上記ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂以外の場合は、ビニルアルコール成分量とビニルアセテート成分量とを測定し、残りのビニルアセタール成分量は100から上記両成分量を差し引くことにより算出することができる。

[0015] 上記ポリビニルアセタール樹脂は、従来公知の方法により製造することができる。例えば、ポリビニルアルコールを温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば0～95℃、好ましくは10～20℃に保持しておいて、所要の酸触媒及びアルデヒドを加え、攪拌しながらアセタール化反応を進行させる。次いで、反応温度を70℃に上げて熟成し反応を完結させ、その後、中和、水洗及び乾燥を行ってポリビニルアセタール樹脂の粉末を得る方法などが挙げられる。

[0016] 上記原料となるポリビニルアルコールとしては、平均重合度500～5000のものが好ましく、平均重合度1000～2500のものがより好ましい。500未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがある。5000を越えると樹脂膜の成形が難しくなることがあり、しかも樹脂膜の強度が強くなりすぎることがある。

[0017] 得られるポリビニルアセタール樹脂のビニルアセテート成分を30モル％以下に設定するのが好ましいので、そのために上記ポリビニルアルコールの鹸化度は、70モル％以上のものが好ましい。70モル％未満であると、樹脂の透明性や耐熱性が低下することがあり、また反応性も低下することがある。より好ましくは、95モル％以上のものである。

上記ポリビニルアルコールの平均重合度及び鹸化度は、例えばJIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。上記アルデヒドとしては、炭素数3～10のアルデヒドが好ましい。炭素数が3未満では、十分な樹脂膜の成形性が得られないことがある。10を越えると、アセタール化の反応性が低下し、しかも反応中に樹脂のブロックが発生しやすくなり、樹脂の合成に困難を伴い易くなる。

[0018] 上記アルデヒドとしては特に限定されず、例えば、プロピオンアルデヒド、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、バレールアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、2-エ

チルブチルアルデヒド、*n*-ヘプチルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒド、*n*-ノニルアルデヒド、*n*-デシルアルデヒド、ベンズアルデヒド、シナムアルデヒドなどの脂肪族、芳香族、脂環族アルデヒドなどが挙げられる。好ましくは、炭素数4～8の*n*-ブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒドである。炭素数4の*n*-ブチルアルデヒドは、得られるポリビニルアセタール樹脂の使用により、各樹脂膜の接着強度が強くなり、また耐候性にも優れ、しかも樹脂の製造も容易となるので、より好ましい。これらは、単独で使用されてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0019] 本発明で用いられる赤外線遮蔽剤としては、例えば、金属微粒子または有機赤外線吸収剤が挙げられる。

[0020] 上記金属微粒子としては、例えばSn、Ti、Si、Zn、Zr、Fe、Al、Cr、Co、Ce、In、Ni、Ag、Cu、Pt、Mn、Ta、W、VなどのほかMoなどの各種金属；例えば $\text{SnO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{FeO}$ 、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CeO}_2$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$ 、 $\text{NiO}$ 、 $\text{MnO}$ 、 $\text{CuO}$ などの各種酸化物；例えばTiN、AlNなどの窒化物、あるいは窒化酸化物；例えばZnSなどの硫化物；例えば9wt% $\text{Sb}_2\text{O}_3$ - $\text{SnO}_2$  (ATO[住友大阪セメント社製]、F- $\text{SnO}_2$ などのドーブ物；さらに例えば $\text{SnO}_2$ -10wt% $\text{Sb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$ -5wt% $\text{SnO}_2$  (ITO)[三菱マテリアル社製]などの複合物などが挙げられる。これらのうち、ATOやITOは自動車用としてその要件を備え特に好ましいものである。

[0021] 上記赤外線遮蔽剤の含有量は、赤外線遮蔽剤の種類にもよるが、通常、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.001～10重量部である。

[0022] 本発明で用いられる着色剤としては、特に制限されず、着色トナー、顔料、染料など汎用されている材料が用いられる。例えば、着色トナーとしては、グリーン、ブラック、ブルー、レッドなどのトナーが挙げられ、これらは単独であるいは混合して用いられる。

[0023] また、顔料としては、例えば、カーボンブラック、チタン白などの無機顔料、ニトロ、ニトロソ系顔料、アゾ系顔料、フタロシアニン系顔料などが挙げられ、染料としては、アゾ系染料、アントラキノン系染料、フタロシアニン系染料などが挙げられる。

[0024] 上記着色剤の含有量は、特に限定されず、合わせガラス用着色中間膜に通常使

用される程度でよく、目的の色に合わせて適宜決定できる。

[0025] 本発明に係る樹脂組成物は、上記の成分以外に、例えば、紫外線吸収剤、可塑剤、酸化防止剤、光安定化剤、界面活性剤などの公知の添加剤を含有していてもよい。

[0026] 上記紫外線吸収剤としては、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ・tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ・tert-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ・tert-アミルフェニル)ベンゾトリアゾールなどのベンゾトリアゾール系誘導体;例えば2, 4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-ドデシルオキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシ-5-スルホベンゾフェノンなどのベンゾフェノン系誘導体;例えば2-エチルヘキシル-2-シアノ-3, 3'-ジフェニルアクリレート、エチル-2-シアノ-3, 3'-ジフェニルアクリレートなどのシアノアクリレート系誘導体などが挙げられる。

[0027] 上記可塑剤としては、この種の間膜に用いられている公知の可塑剤、例えば、一塩基酸エステル、多塩基酸エステルなどの有機エステル系可塑剤などが用いられる。

[0028] 上記一塩基酸エステルの中では、例えば、トリエチレングリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプタン酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸(n-ノニル酸)、デシル酸などの有機酸との反応によって得られたグリコール系エステルが好ましい。その他、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコールと上記有機酸とのエステルも用いられる。

[0029] 上記多塩基酸エステルとしては、例えば、アジピン酸、セバチン酸、アゼライン酸などの有機酸と、炭素数4~8の直鎖状又は分岐状アルコールとのエステルが好ましい。

- [0030] 上記有機エステル系可塑剤の具体例としては、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキソエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ-n-オクトエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプトエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプトエート、その他ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペートが好適に用いられる。
- [0031] その他、エチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 3-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 4-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 4-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 2-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルヘキソエート、ジプロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルペンタエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリエートなども、可塑剤として用いられる。
- [0032] 上記可塑剤量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20~70重量部が好ましく、より好ましくは40~60重量部である。20重量部未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、70重量部を越えると可塑剤がブリードして、光学歪みが大きくなったり、樹脂膜の透明性や接着性が低下することがある。
- [0033] 上記酸化防止剤としては、特に限定されず、フェノール系のものとして、例えば、*t*-ブチルヒドロキシトルエン(BHT)(住友化学社製「スミライダーBHT(商品名)」)、テトラキス-[メチレン-3-(3'-5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン(イルガノックス1010、チバガイギー社製)などが挙げられる。
- [0034] 上記光安定剤としては、ヒンダードアミン系のもの、例えば、旭電化社製「アデカスタブLA-57(商品名)」などが挙げられる。
- [0035] 上記界面活性剤としては、例えば、ラウリル硫酸ナトリウム、アルキルベンゼンスルホン酸などが挙げられる。
- [0036] (製造方法)



本発明の合わせガラス用着色中間膜の製造方法は、特に限定されるものではないが、ポリビニルアセタール樹脂に所定量の着色剤、赤外線遮蔽剤及びリン酸エステル化合物、必要に応じて他の添加剤を配合し、これを均一に混練りした後、押出法、カレンダー法、プレス法、キャストイング法、インフレーション法などによりシート状に製膜して樹脂膜を成形し、これを着色中間膜とする。

- [0037] 本発明の合わせガラス用着色中間膜の全体の膜厚は、合わせガラスとして最小限必要な耐貫通性や耐候性を考慮すると、実用的には通常の合わせガラス用中間膜における膜厚と同様に、一般に0.3～1.6mmの範囲が好ましい。
- [0038] 上記合わせガラスに用いられるガラス板としては、無機透明ガラス板のみならず、ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板などの有機透明ガラス板も使用することができる。
- [0039] 上記無機透明ガラス板の種類としては、特に限定されるものではなく、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、熱線吸収板ガラス、着色された板ガラスなどの各種無機ガラスなどが挙げられ、これらは単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。また、無機透明ガラス板と有機透明ガラス板とが積層されたものであってもよい。また、ガラスの厚みは、用途によって適宜選択されればよく、特に制限されるものではない。
- [0040] 本発明の合わせガラスを製造するには、通常の場合の合わせガラスの製法が採用される。例えば、2枚の透明なガラス板の間に、前述の方法で成形した樹脂膜からなる着色中間膜を挟み、これをゴムバッグに入れ、減圧吸引しながら約70～110℃で予備接着し、次いで、オートクレーブを用いるか又はプレスを用い、約120～150℃で、約10～15kg/cm<sup>2</sup>の圧力で本接着を行うことにより製造される。
- [0041] また、合わせガラスの製造方法において、少なくとも一対のガラス板間に、可塑化されたポリビニルアセタール樹脂が製膜されてなる上記着色中間膜を介在させ、減圧下で吸引脱気すると同時に、温度60～100℃で加熱圧着してもよい。より具体的には、ガラス板／着色中間膜／ガラス板の積層体をゴムバッグに入れ、例えばオートクレーブ中で、－500～－700mmHg程度の減圧下で吸引脱気しながら約60～100℃の温度及び1～10kg/cm<sup>2</sup>程度の圧力で10～30分間程度加熱圧着し、脱気と

接着とを同時に行うことにより実施される。

- [0042] この製造方法においては、上述のように、加熱圧着する時の温度を60～100℃の範囲に限定し、圧着圧力、圧着時間及び吸引脱気する時の減圧度などの諸条件を上記程度の範囲内で適宜設定することにより、着色中間膜とガラスとの接着力を所望の適性範囲内に収まるように調整することができる。

## 実施例

- [0043] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

- [0044] (実施例1～6及び比較例)

ポリビニルブチラル樹脂100重量部に対して、錫ドープ酸化インジウム(ITO)0.28重量部とトリオクチルホスフェート0.014重量部をトリエチレングリコールルージエチルヘキサノエート(3GO)10重量部に分散させた可塑剤分散液と、これとは別に用意したトリエチレングリコールルージエチルヘキサノエート(3GO)29重量部、下記表1中に記載された量の着色トナー(使用色の種類は表記載のとおり)、酸化防止剤、紫外線吸収剤を添加し、3本ロールを用いて混合した。得られた混合物を加熱プレスにより成形して0.76mmのポリビニルブチラル樹脂シート(着色中間膜)を得た。

- [0045] [表1]

実施例 No.	樹脂 (PVB)	可塑剤 (3GO)	酸化防 止剤 (BHT)	紫外線 吸収剤	帯電防 止剤	赤外線 遮熱材 (ITO)	リン酸エス テル	着色トナー (注)
1	100	39	0.4	0.4	0.3	0.28	0.014	0.099 (緑+黒)
2	100	39	0.84	0.84	0.32	0.28	0.014	0.099 (緑+黒)
3	100	39	0.4	0.4	0.3	0.28	0.014	0.08 (黒+青+赤)
4	100	39	0.84	0.84	0.32	0.28	0.014	0.08 (黒+青+赤)
5	100	39	0.4	0.4	0.3	0.28	0.014	0.679 (黒+青+赤)
6	100	39	0.84	0.84	0.32	0.28	0.014	0.679 (黒+青+赤)
比較例	100	39	0.2	0.2	0.3	0	0	0.703 (黒+青+赤)

(注) 緑はグリーントナー、黒はブラックトナー、青はブルートナー、赤はレッドトナーを表す。

## [0046] (試験例)

下記試験方法に従い、上記実施例1～6及び比較例で得られたポリビニルブチラール樹脂シートをそのまま又はクリアガラスに挟んでヘイズ値を求める共に、該樹脂シートの光線透過率などを求めた。試験結果は下記表2及び3の通りである。

## (試験方法)

## 1. ヘイズ値の測定:

着色中間膜をそのまま又はクリアガラスに挟んで23℃の水に浸漬し、24時間後に積分式濁度計を用いて測定した。

## 2. 光線透過率の測定:

得られた合せガラスについて下記の測定および評価を行った。

分光光度計(340型自記、日立製作所製)で波長340～2100nmの間の透過率を測定し、JIS R3106によって可視光透過率、日射透過率Ts2100、色調などを求めた。

## [0047] [表2]

実施例 No.	ヘイズ値(AVE)		遮熱特性			
	膜のみ	クリアガラス挟み	Ts2100(%)	T(1550nm)(%)	T(850nm)(%)	A光Y値
1	42.9	31.3	61.5	14.2	69.0	79.0
2	38.0	35.0	60.4	12.0	68.4	78.3
3	39.0	30.8	57.6	12.5	67.2	72.8
4	39.9	27.3	57.0	12.1	66.9	72.4
5	41.6	33.6	26.6	10.0	39.4	20.8
6	45.7	36.2	26.1	9.5	39.1	20.3
7	89.6	88.9	34.7	57.5	42.8	21.6

## [0048] [表3]

実施例 No.	透過色の色目			反射色の色目			
	L* (A光2°透 過)	a* (A光2°透 過)	b* (A光2°透 過)	反射Y1 (C光2°)	L* (A光2° 反射)	a* (A光2° 反射)	b* (A光2° 反射)
1	91.2	-1.7	2.4	-3.7	33.9	-1.3	-0.8
2	90.9	-1.8	2.9	-2.6	33.5	-1.3	-0.5
3	88.4	-3.4	1.3	-6.5	32.6	-2.5	-1.2
4	88.2	-3.5	1.6	-6.5	32.9	-2.5	-1.2
5	52.7	-0.9	-5.6	0.1	28.3	1.2	-0.3
6	52.2	-0.8	-5.4	0.0	28.2	1.1	-0.3
7	53.6	-2.6	-7.3	-2.8	27.6	0.5	-0.7

上記表2及び3から分かるように、本発明の着色中間膜は光線透過率が50%を超える着色中間膜であっても、ヘイズ値が比較品に較べて顕著に優れており白化を防止できることが分かる。また、本発明の着色中間膜は光線透過率が50%を越えても赤外線遮蔽剤により赤外線が顕著に遮蔽されて低い赤外線透過率を維持できることが分かる。

#### 産業上の利用可能性

[0049] 本発明の合わせガラス用着色中間膜を用いた合わせガラスは自動車や建設物の窓ガラスとして有用である。

### 請求の範囲

- [1]      ポリビニルアセタール樹脂と着色剤と赤外線遮蔽剤とを含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用着色中間膜であって、樹脂組成物が、さらにポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して5重量部以下の割合でリン酸エステル化合物を含有することを特徴とする合わせガラス用着色中間膜。
- [2]      リン酸エステル化合物が、トリアルキルホスフェート、トリアルコキシアルキルホスフェート、トリアリルホスフェートまたはアルキル・アリルホスフェートである請求の範囲第1項に記載の合わせガラス用着色中間膜。
- [3]      リン酸エステル化合物が、トリオクチルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリクレシルホスフェートまたはイソデシルフェニルホスフェートである請求の範囲第1項に記載の合わせガラス用着色中間膜。
- [4]      リン酸エステル化合物の含有量がポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.001～5重量%である請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の合わせガラス用着色中間膜。
- [5]      少なくとも一対のガラス間に、請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の合わせガラス用着色中間膜を介在させてなることを特徴とする合わせガラス。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/301751

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

**C03C27/12** (2006.01), **C09J129/14** (2006.01), **C09K3/00** (2006.01)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

**C03C27/12** (2006.01)

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2001-302289 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 31 October, 2001 (31.10.01), Claims; Par. Nos. [0043], [0047], [0064]; example 1 & US 6673456 B1 Claims; column 11, lines 14 to 24, 54 to 61; column 15, lines 23 to 31; example 1 & EP 1227070 A1 & WO 2001/025162 A1	1-5 1-5
P, X	JP 2005-187226 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 14 July, 2005 (14.07.05), Claims; Par. Nos. [0022], [0026], [0027], [0030], [0066]; Table 1 & WO 205/008576 A1	1-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
16 February, 2006 (16.02.06)

Date of mailing of the international search report  
28 February, 2006 (28.02.06)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2006/301751

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2003/018502 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 06 March, 2003 (06.03.03), Claims; page 19, lines 12 to 14; page 25, lines 14 to 26 (Family: none)	1-5

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/12(2006.01), C09J129/14(2006.01), C09K3/00(2006.01)

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/12(2006.01)

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2001-302289 A (積水化学工業株式会社) 2001.10.31, 特許請求の範囲、【0043】、【0047】、【0064】、実施例1	1-5
Y	& US 6673456 B1, 特許請求の範囲、第11欄第14-24行、第54-61行、第15欄第23-31行、実施例1 & EP 1227070 A1 & WO 2001/025162 A1	1-5
P, X	JP 2005-187226 A (積水化学工業株式会社) 2005.07.14, 特許請求の範囲、【0022】、【0026】、【0027】、【0030】、【0066】、表1 & WO 2005/008576 A1	1-5

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16.02.2006

国際調査報告の発送日

28.02.2006

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

繁田 えい子

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

4T

3234



様式PCT/ISA/210 (第2ページの続き) (2005年4月)